

BEST AVAILABLE COPY

-3- (WPAT)

AN - 68-88775P/00 (88775P)

XR - API 7013529

TI - Transparent rigid blend contng polypropylene

DC - A17 E19

PA - (SUMO) SUMITOMO CHEMICAL CO LTD

NP - 8

PN - NL6701429-A 00.01.00 (6800)

J70023416-B 00.01.00 (7032) {JP}

DE1694914-B 00.01.00 (7324)

NL-142430-B 74.06.17 (7429)

GB1144853-A 00.01.00 (6801)

FR1509720-A 00.01.00 (6801)

CA-796818-A 00.01.00 (6801)

DE1694914-A 72.03.09 (8537)

LA - E

PR - 66.01.31 66JP-005751

IC - C08F-029/02

AB - (NL6701429)

A transparent polypropylene composition with high shock resistance and rigidity consists of a mixture of (a) 65-96 wt. % of crystalline polypropylene with a melt index of up to 10 at 230 deg.C. under a load of 2160 g. (b) 2-30 weight % of normally solid polyethylene and (c) 2-20 wt. % of a practically amorphous ethylene-propylene copolymer which contains 10-70 moles % of combined ethylene and which has a degree of crystallinity up to 35% and an intrinsic viscosity of at least 1.5 in tetralin at 135 deg.C., and (d) 0.05-5 wt. %, on the mixture of polymers, of a nucleating agent which is an aromatic sulphonic acid compound or an organic carboxylic acid compound.

The high shock resistance and rigidity are achieved by incorporation of only a small amount of the rubbery copolymer, and by incorporation of the cheaper polyethylene.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

51

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

Int. Cl.:

C 08 f, 29/02

DEUTSCHES



PATENTAMT

52

Deutsche Kl.: 39 b4, 29/02

10

11

21

22

43

Offenlegungsschrift 1 694 914

Aktenzeichen: P 16 94 914.7 (S 108096)

Anmeldetag: 31. Januar 1967

Offenlegungstag: 9. März 1972

Ausstellungspriorität: —

30

Unionspriorität

32

Datum: 31. Januar 1966

33

Land: Japan

31

Aktenzeichen: 5751-66

54

Bezeichnung: Formmasse auf Polypropylenbasis

61

Zusatz zu: —

62

Ausscheidung aus: —

71

Anmelder: Sumitomo Chemical Co. Ltd., Osaka (Japan)

Vertreter gem. § 16 PatG: Jung, E., Dipl.-Chem. Dr. phil.; Vossius, V., Dipl.-Chem. Dr. rer. nat.;
Patentanwälte, 8000 München

72

Als Erfinder benannt: Shirayama, Kenzo; Kitamura, Tadakatsu; Niihama (Japan)

Benachrichtigung gemäß Art. 7 § 1 Abs. 2 Nr. 1 d. Ges. v. 4. 9. 1967 (BGBl. I S. 960): 25. 11. 1969
Prüfungsantrag gemäß § 28 b PatG ist gestellt

1694914

ORIGINAL INSPECTED

DIPL.-CHEM. DR. ELISABETH JUNG
DIPL.-CHEM. DR. VOLKER VOSSIUS
DIPL.-PHYS. DR. JÜRGEN SCHIRDEWAHN
PATENTANWÄLTE

8 MÜNCHEN 23,
CLEMENSSTRASSE 30
TELEFON 345067
TELEGRAMM-ADRESSE: INVENT/MÜNCHEN
TELEX 5-29686

1694914

P 16 94 914.7-43
u.Z.: C 536C
POS-9752

12. Mai 1970
vdB/or

SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LTD.,
Osaka, Japan

"Formmasse auf Polypropylenbasis"

Priorität: 31. Januar 1966, Japan, Nr. 5751/66

Polypropylen ist ein wertvolles Kunstharz zur Herstellung von Formteilen, da es eine Reihe guter Eigenschaften besitzt, z.B. ausgezeichnete mechanische Eigenschaften, wie Steifigkeit und Härte und eine hohe Erweichungstemperatur, und da daraus hergestellte Formteile sich durch einen hohen Oberflächenglanz auszeichnen. Infolge seines hohen Kristallisationsgrades hat Polypropylen jedoch den Nachteil, dass seine Schlagzähigkeit und Lichtdurchlässigkeit nicht befriedigt.

Zur Verbesserung der Schlagzähigkeit von Polypropylen war es bislang üblich, dem Polypropylen Polyäthylen und ein kautschukartiges Polymer, z.B. Polyisobutylene, Polybutadien oder ein amorphes

Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat, einzuverleiben. Durch diese Stoffe werden jedoch die Steifigkeit und die Härte sowie die Lichtdurchlässigkeit des Polypropylen stark vermindert.

Aus den japanischen Patentveröffentlichungen 1 809/64 und 1 652/65 ist es bekannt, dem Polypropylen oder einem Gemisch aus Polypropylen und einem kautschukartigen Polymer zur Verbesserung der Schlagzähigkeit ohne Beeinträchtigung der Steifigkeit, eine organische Carbonsäure oder deren Metallsalz als Keimbildner (nucleating agent) einzuverleiben. Weiterhin ist aus der japanischen Patentveröffentlichung Nr. 18 746/64 bekannt, dass ternäre Gemische aus Polypropylen, Polyäthylen mit einer Dichte von mindestens 0,93 und entweder einem amorphen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat oder Polyisobutylen im Vergleich zu Polypropylen bedeutend verbesserte Schlagzähigkeitswerte aufweisen.

Die Erfindung bezweckt es, Formmassen auf Polypropylenbasis zur Verfügung zu stellen, die eine stark verbesserte Schlagzähigkeit und Biegefestigkeit sowie eine hohe Lichtdurchlässigkeit besitzen.

Gegenstand der Erfindung ist eine Formmasse auf Polypropylenbasis, bestehend aus

1) einem ternären Gemisch von

(a) 65 bis 96, vorzugsweise 75 bis 85 Gew.-% kristallinem Polypropylen, das bei 230°C unter einer Belastung von 2,16 kg einen Schmelzindex von höchstens 10, vorzugsweise höchstens 2 besitzt.

- (b) 2 bis 30, vorzugsweise 5 bis 20 Gew.-% unter Normalbedingungen festem Polyäthylen und
 - (c) 2 bis 20, vorzugsweise 5 bis 15 Gew.-% eines im wesentlichen amorphen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisats mit einem Gehalt von durchschnittlich 10 bis 70 Mol-% gebundenem Äthylen, einem Kristallinitätsgrad von bis zu 35 % und mit einer Intrinsic-Viskosität von mindestens 1,5, vorzugsweise mindestens 2,0 in Tetralin bei 135°C und
- 2) auf 100 Gewichtsteile des ternären Gemisches 0,01 bis 5, vorzugsweise 0,05 bis 5 und insbesondere 0,1 bis 1 Gewichtsteile mindestens einer aromatischen Sulfonsäureverbindung oder organischen Carbonsäureverbindung, als Keimbildner (nucleating agent).

Es wurde überraschenderweise gefunden, dass der Zusatz eines Keimbildners zu einem ternären Gemisch aus bestimmten Mengen Polypropylen, amorphem Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat und Polyäthylen zu einer wesentlich grösseren Verbesserung der Schlagzähigkeit des Gemisches führt, als der Zusatz eines Keimbildners zu einem binären Gemisch aus der gleichen Menge Polypropylen und entweder amorphem Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat oder Polyäthylen.

Während Formmassen, die aus einem binären Gemisch aus Polypropylen und einem Modifizierungsmittel, z.B. Polyäthylen oder einem kautschukartigen Polymer und einem Keimbildner bestehen, nur dann eine hohe Schlagzähigkeit aufweisen, wenn sie grosse Mengen des

Modifizierungsmittels enthalten, haben die erfindungsgemässen Formmassen auf Polypropylenbasis bereits bei vergleichsweise geringen Gehalten an Modifizierungsmitteln (Polyäthylen und Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat) eine überraschend hohe Schlagzähigkeit. Das heisst, dass bei den erfindungsgemässen Formmassen auf Polypropylenbasis eine hohe Schlagzähigkeit nicht durch eine Verschlechterung der an sich hervorragenden anderen Eigenschaften des Polypropylens, z.B. hohe Steifigkeit, erkauft werden muss.

Ferner ist es überraschend, dass ein ternäres Gemisch aus Polypropylen, Polyäthylen und einem amorphen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat eine wesentlich höhere Lichtdurchlässigkeit als ein binäres Gemisch aus Polypropylen und einem Modifizierungsmittel besitzt, die durch die Zugabe eines Keimbildners sogar noch weiter verbessert werden kann.

Die erfindungsgemässen Formmassen haben den weiteren Vorteil, dass ein beträchtlicher Teil der dem Polypropylen zur Erzielung einer hohen Schlagzähigkeit einverleibten Modifizierungsmittel aus Polyäthylen besteht, das billiger ist als die kautschukartigen Polymeren, die zu dem gleichen Zweck in binären Polypropylenformmassen enthalten sein müssen. Die erfindungsgemässen Formmassen sind deshalb auch wirtschaftlich sehr vorteilhaft.

Als Polypropylenkomponente für erfindungsgemässe Formmassen ist ein Polypropylen geeignet, das durch Polymerisation in Anwesenheit eines Ziegler-Natta-Katalysators hergestellt ist. Geeignet sind vorwiegend kristalline Polypropylene, die zum grössten Teil aus Propylen bestehen und mindestens 50 Gew.-% isotaktische Einheiten

im Molekül enthalten. Beispiele derartiger kristalliner Polypropylene sind kristalline Propylenhomopolymerisate und kristalline Propylen-Äthylen-Mischpolymerisate.

Als Polyäthylenkomponente in erfindungsgemässen Formmassen sind Polymere geeignet, die grösstenteils aus Äthylen bestehen. Es können beliebige Polyäthylene verwendet werden, d.h. sowohl Polyäthylen mit niederer Dichte als auch Polyäthylen hoher Dichte. Besonders bevorzugt ist Polyäthylen niederer Dichte.

Als Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat-Komponente eignen sich amorphe Äthylen-Propylen-Mischpolymerisate, die in heissem Heptan praktisch vollständig löslich und durch Polymerisation eines Gasgemisches aus Äthylen und Propylen in Gegenwart eines Ziegler-Natta-Katalysators hergestellt sind.

Diese amorphen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisate sind entweder kautschukartige Polymerisate, die gegebenenfalls eine dritte Monomerkomponente (Äthylen-Propylen-Kautschuk oder Äthylen-Propylen-Terpolymerisate) enthalten können, oder praktisch vollständig in heissem Heptan lösliche Polymerisate, die als Nebenprodukt bei der Herstellung von kristallinen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisaten oder kristallinen Äthylen-Propylen-Blockmischpolymerisaten anfallen. Unter kristallinen Äthylen-Propylen-Blockmischpolymerisaten sind Polymere zu verstehen, die durch ein zweistufiges Polymerisationsverfahren hergestellt werden, wobei zuerst (erste Stufe) Propylen polymerisiert wird und dann (zweite Stufe) ein Gasgemisch aus Äthylen und Propylen eingeleitet wird, so dass ein Äthylen-Propylen-Mischpolymer, aufgepfropft

auf das in der ersten Polymerisationsstufe gebildete Polypropylen, entsteht.

Das amorphe Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat in den erfindungsgemässen Formmassen soll in Tetralinlösung bei 135°C eine Intrinsic-Viskosität von mindestens 1,5, vorzugsweise mindestens 2,0 und insbesondere mindestens 2,5 besitzen.

Die vorstehend genannten Mengenanteilbereiche von Polypropylen, Polyäthylen und amorphem Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat, sowie der Schmelzindexbereich des Polypropylens sind kritische Grössen, die unbedingt eingehalten werden müssen, um Formmassen mit den genannten günstigen Eigenschaften zu erhalten.

Als Zusätze, d.h. Keimbildner für erfindungsgemässe Formmassen eignen sich aromatische Sulfonsäuren mit Sulfonsäuregruppen in den aromatischen Ringen, z.B. Benzolsulfonsäure und Naphthalinsulfonsäuren, aromatische Sulfonsäureverbindungen, bei welchen mindestens eines der Wasserstoffatome des aromatischen Rings durch mindestens ein Halogenatom oder eine Alkyl-, Alkoxy-, Nitro-, Amino- oder Hydroxylgruppe substituiert ist, sowie die Metallsalze der vorstehend genannten Säuren mit Metallen der I., II. und III. Gruppe des Periodensystems. Im Hinblick auf die Stabilität von Polypropylen sind die Natrium-, Magnesium-, Calcium- und Aluminiumsalze aromatischer Sulfonsäuren besonders bevorzugt. Beispiele besonders wirksamer Metallsalze von aromatischen Sulfonsäuren sind Natrium-, Magnesium-, Calcium- und Aluminium- α -naphthalinsulfonat, Natrium-8-amino-naphthalinsulfonat, Natrium-, Magnesium-, Calcium- und Aluminiumbenzol-

209811/1345

sulfonat, Calcium- und Magnesium-2,5-dichlorbenzolsulfonat und die Calcium- und Magnesiumsalze der m-Xylolsulfonsäure.

Ausser den vorgenannten Verbindungen können in den erfindungsgemässen Formmassen als Keimbildner die in den japanischen Patentveröffentlichungen Nr. 1 809/64, 14 062/64 und 1 652/65 und den belgischen Patentschriften 631 471, 633 715, 633 716 und 633 717 beschriebenen organischen Carbonsäuren oder deren Metallsalze verwendet werden, sowie die in den japanischen Patentveröffentlichungen Nr. 27 637/64 und 18 854/65 offenbarten Keimbildner, nämlich Phthalsäureanhydrid und Carbonsäuresalze, Carbonsäuren oder Carbonsäureanhydride sowie Aluminiumphosphat oder anorganische und organische Aluminiumverbindungen.

Spezielle Beispiele für diese Keimbildner sind Bernstein-, Glutar-, Adipin-, Phenylessig-, Diphenylessig-, p-Isopropylbenzoes-, p-tert.-Butylbenzoes- und o-tert.-Butylbenzoesäure sowie die Lithium-, Natrium-, Magnesium-, Calcium-, Barium-, Aluminium-, Titan- und Chromsalze dieser Säuren. Diese Keimbildner können einzeln oder als Gemisch von 2 oder mehr der genannten Verbindungen in den erfindungsgemässen Formmassen enthalten sein.

Das Gemisch der Polymerkomponenten kann einfach durch gleichzeitiges Zusammenkneten der geschmolzenen Komponenten erfolgen, z.B. mittels eines Heizwalzwerks, eines Extruders oder eines Innenmischers. Der Keimbildner kann auf die gleiche Weise der Formmasse einverleibt werden, d.h. er wird in den Polymeren unter Verwendung eines geeigneten Dispergierhilfsmittels dispergiert.

Die Herstellung der Formmasse wird in der Praxis beispielsweise so durchgeführt, dass das Polyäthylen und das Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat gleichzeitig einem Gemisch aus Polypropylen und Keimbildner einverleibt werden, das auf einem Heizwalzwerk sorgfältig verknetet wurde. Wahlweise können zuerst die beiden Komponenten zu einem Gemisch verknetet werden, das dann dem Gemisch aus Polypropylen und Keimbildner einverleibt wird. Die erforderliche Mischtemperatur beträgt 160 bis 190°C. Eine Mischzeit von 5 bis 20 Minuten ist ausreichend. Während des Vermischens der vorstehend genannten Komponenten zur Herstellung der Formmasse können ausserdem kleine Mengen anderer Zusätze, z.B. Stabilisatoren, Antioxydationsmittel, Verarbeitungshilfsmittel und Farbstoffe zugemischt werden.

Die Beispiele erläutern die Erfindung.

Beispiel 1

Ein kristallines Polypropylen, hergestellt in Gegenwart eines Ziegler-Natta-katalysators, mit einer Intrinsic-Viskosität $[\eta]$ von 2,66 in Tetralin bei 135°C, 95 % isotaktischen Einheiten und einem Schmelzindex von 0,85 bei 230°C unter einer Belastung von 2,16 kg wird mit einer Lösung eines Gemisches von 0,2 % (bezogen auf die gesamte Polymermenge) Dilaurylthiodipropionat und 0,04 % 1,1,3-Tri-(2-methyl-4-hydroxy-5-tert.-butylphenyl)-butan in Methanol als Antioxydationsmittel, sowie mit 0,5 % (bezogen auf das gesamte Polymer) wasserfreiem Natriumbenzolsulfonat versetzt. Nach dem Abdampfen des Methanols wird das Gemisch auf einem Mischwalzwerk bei 190°C geschmolzen und in den in Tabelle I aufgeführten Mengenverhältnissen mit Polyäthylen und einem amorphen

Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat gemischt und 10 Minuten verknetet. Als amorphes Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat wird der in heissem Heptan lösliche Teil eines Polymerisationsproduktes verwendet, der bei der Herstellung eines kristallinen Äthylen-Propylen-Blockmischpolymerisats als Nebenprodukt anfällt. Aus der Formmasse werden 4 mm und 1 mm starke Platten hergestellt, die als Probekörper zur Bestimmung der Schlagzähigkeit bzw. der Steifigkeit dienen. Der Schlagzähigkeitstest wird nach der "Izod-Methode" (ASTM D-256-56) unter Verwendung von 4 mm starken Platten in 3 Lagen durchgeführt. Der Steifigkeitstest wird gemäss ASTM D-747-63 unter Verwendung einer 1 mm starken Platte durchgeführt. Die Versuchsergebnisse sind in Tabelle I zusammengefasst.

Tabelle I

Versuch Nr.	Ternäres Gemisch, Gew. %			Natriumbenzolsulfonat PHR	Kerbschlagzähigkeit bei 20°C kgcm/cm ²	Steifigkeit bei 20°C kg/cm ²	**** Lichtdurchlässigkeit
	Polypropylen	** Äthylen	*** Amorphes Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat				
1	100	0	0	0	2,9	12700	
2	100	0	0	0,5	2,9	13900	weit besser
3	90	10	0	0	3,3	11900	gleich
4	90	10	0	0,5	3,6	13000	weit besser
5	90	5	5	0	5,0	11500	besser
6	90	5	5	0,5	7,8	12700	weit besser
7	90	0	10	0	4,2	10100	schlechter
8	90	0	10	0,5	6,1	11500	schlechter
41	85	15	0	0	2,7	10700	gleich
42	85	15	0	0,5	3,0	12300	besser
43	85	10	5	0	5,8	10700	gleich

Fortsetzung Tabelle I

Ver- such Nr.	Ternäres Gemisch, Gew. %			Natri- umben- zolsul- fonat PHR	Kerb- schlag- zähig- keit bei 20°C kg/cm ²	Steifig- keit bei 20°C kg/cm ²	**** Licht- durch- lässig- keit
	Poly- propy- len	Poly- äthy- len	Amorphes Äthylen- Propylen- Mischpoly- merisat				
44	85	10	5	0,5	37,7*	11400	besser
45	85	7,5	7,5	0	7,9	9500	gleich
46	85	7,5	7,5	0,5	41,6*	11700	besser
47	85	5	10	0	8,3	10100	gleich
48	85	5	10	0,5	18,8	12100	etwas besser
49	85	0	15	0	5,1	9300	schlechter
50	85	0	15	0,5	7,5	10200	schlechter
9	80	20	0	0	2,5	9500	gleich
10	80	20	0	0,5	2,8	11800	besser
11	80	15	5	0	6,8	9600	gleich
12	80	15	5	0,5	15,7*	10900	weit besser
13	80	10	10	0	8,6	10200	gleich
14	80	10	10	0,5	52,2*	11500	besser
15	80	5	15	0	10,5	9400	schlechter
16	80	5	15	0,5	38,3*	11000	schlechter
17	80	0	20	0	6,1	8600	schlechter
18	80	0	20	0,5	8,5	9200	schlechter
51	75	25	0	0	2,6	9000	gleich
52	75	25	0	0,5	2,8	11200	besser
53	75	20	5	0	9,2	8800	gleich
54	75	20	5	0,5	28,7*	10700	besser
55	75	15	10	0	23,7*	8500	gleich
56	75	15	10	0,5	52,4*	10200	besser
57	75	10	15	0	43,2*	8600	etwas schlechter
58	75	10	15	0,5	59,5*	9800	etwas schlechter
59	75	5	20	0	19,1*	8300	schlechter
60	75	5	20	0,5	50,2*	10000	schlechter

Fortsetzung Tabelle I

Versuch Nr.	Ternäres Gemisch, Gew.%			Natri- umben- zolsul- fonat PHR	Kerb- schlag- zähig- keit bei 20°C kgcm/cm ²	Steifig- keit bei 20°C kg/cm ²	**** Licht- durch- lässig- keit
	Poly- propy- len	Poly- äthy- len	Amorphes Äthylen- Propylen- Mischpoly- merisat				
61	75	0	25	0	9,0	7900	schlechter
62	75	0	25	0,5	14,5	8800	schlechter
19	70	30	0	0	2,8	8300	etwas besser
20	70	30	0	0,5	2,8	10800	besser
21	70	20	10	0	47,3*	7700	gleich
22	70	20	10	0,5	65,0*	9500	besser
23	70	0	30	0	13,8	7400	schlechter
24	70	0	30	0,5	24 *	8400	schlechter

* --- Der Probekörper platzt bei der Zerstörung nicht ab.

** --- Polyäthylen mit niederer Dichte (0,92) und einem Schmelzindex von 1,6 bei 190°C unter einer Belastung von 2,16 kg.

*** --- Das Mischpolymerisat besitzt einen Äthylengehalt von 8,5 Gew.-% und eine Intrinsic-Viskosität $[\eta]$ von 2,78 in Tetralin bei 135°C.

**** --- Visuelle Beurteilung im Vergleich zu einer Polypropylenplatte gemäss Versuch Nr. 1.

Aus Tabelle I ist zu ersehen, dass die Kerbschlagzähigkeit der Polypropylenformmassen durch einen Gehalt an Natriumbenzolsulfonat

im Vergleich zu Formmassen, die kein Natriumbenzolsulfonat enthalten, erhöht wird, und dass dieser Effekt bei ternären Gemischen deutlich stärker ausgeprägt ist. Weiterhin ist zu erkennen, dass durch Natriumbenzolsulfonat auch die Steifigkeit und Lichtdurchlässigkeit der Formmassen erhöht wird.

Beispiel 2

Unter Verwendung des gleichen Polypropylens und amorphen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisats wie in Beispiel 1, sowie verschiedener Polyäthylensorten mit unterschiedlichem Schmelzindex und unterschiedlicher Dichte werden ternäre Gemische mit einem Gehalt von 80 Teilen Polypropylen, 10 Teilen amorphem Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat und 10 Teilen Polyäthylen hergestellt und wie in Beispiel 1 geprüft. Die Versuchsergebnisse sind in der Tabelle II zusammengefasst.

Tabelle II

Versuch Nr.	Polyäthylensorte			Natrium- benzol- sulfonat	Kerbschlag- zähigkeit bei 20°C ₂ kg-cm/cm ²	Steifig- keit bei 20°C ₂ kg/cm ²
		Schmelz- index	Dichte			
13	Polyäthylen mit niederer Dichte	1,6	0,92	0	8,6	10200
14	"	1,6	0,92	0,5	52,2*	11500
25	"	7	0,92	0	10,0	9100
26	"	7	0,92	0,5	56,6*	10300
27	"	20	0,92	0	10,3	9300
28	"	20	0,92	0,5	47,8*	11000
29	"	50	0,92	0	10,1	9500
30	"	50	0,92	0,5	24,5*	11200
31	Polyäthylen mit hoher Dichte (Marlex)	0,9	0,96	0	10,1	10100
32	"	0,9	0,96	0,5	23,9	11100

* --- Der Probekörper platzt bei der Zerstörung nicht ab.

Beispiel 3

Aus dem gleichen Polypropylen, Polyäthylen und amorphen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat wie in Beispiel 1 in einem Gewichtsverhältnis von 80 : 10 : 10 Teilen werden unter Verwendung verschiedener Keimbildner Formmassen hergestellt und gemäss Beispiel 1 geprüft. Die Tabelle III zeigt die dabei erhaltenen Ergebnisse.

Tabelle III

Versuch Nr.	Keimbildner		Kerbschlag- zähigkeit bei 20°C ₂ kg-cm/cm ²	Steifig- keit bei 20°C ₂ kg/cm ²
	Bezeichnung	Menge (PHR)		
13	-	0	8,6	10200
14	Natriumbenzolsulfonat	0,5	52,2*	11500
33	p-tert. Butylbenzoesäure	0,5	41,3*	11000
34	Aluminium p-tert.-butyl- benzoat	0,5	41,6*	11600
35	Adipinsäure	0,5	52,4*	10500
36	Phthalsäureanhydrid	0,1	50,3*	10400
	(Calciumstearat	0,2		

* — Der Probekörper platzt bei der Zerstörung nicht ab.

Beispiel 4

Aus dem gleichen Polypropylen, Polyäthylen und amorphen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat wie in Beispiel 1, in einem Mengenverhältnis von 80 : 10 : 10 Teilen, jedoch unter Verwendung verschiedener Mengen Natriumbenzolsulfonat als Keimbildner, werden Formmassen hergestellt und analog Beispiel 1 geprüft. Die nachstehende Tabelle IV zeigt die dabei erhaltenen Versuchsergebnisse.

Tabelle IV

Ver- such	Natriumbenzol- sulfonat-Menge (PHR)	Kerbschlagzähigkeit bei 20°C, kg-cm/cm ²	Steifigkeit bei 20°C, kg/cm ²
37	1	17,2*	11100
14	0,5	52,2*	11500
38	0,2	38,3*	10900
39	0,1	56,7*	11000
40	0,05	57,4*	10900
13	0	8,6	10200

* --- Der Probekörper platzt bei der Zerstörung nicht ab.

Beispiel 5

Unter Verwendung des gleichen Polypropylens und Polyäthylens wie in Beispiel 1 und eines Äthylen-Propylenkautschuks mit einer Intrinsic-Viskosität ^[7] von 1,38 und einem Äthylengehalt von 38,4 Mol-% werden Formmassen hergestellt, die analog Beispiel 1 untersucht werden. Die dabei erhaltenen Ergebnisse sind in Tabelle V zusammengestellt.

Tabelle V

16

- 16 -

1694914

Versuch Nr.	Ternäres Gemisch, Gew. %			Natri- umben- zolsul- fonat PHR	Kerb- schlag- zähig- keit bei 20°C kg/cm ²	Steifig- keit bei 20°C kg/cm ²	**** Licht- durch- lässig- keit
	Poly- propy- len	** Poly- äthy- len	*** Amorphes Äthylen- Propylen- Mischpoly- merisat				
3	90	10	0	0	3,3	11900	gleich
4	90	10	0	0,5	3,6	13000	weit besser
63	90	5	5	0	9,5	11400	etwas besser
64	90	5	5	0,5	23,8*	13200	besser
65	90	0	10	0	20,8*	11700	schlechter
66	90	0	10	0,5	24,5*	12500	schlechter
41	85	15	0	0	2,7	10700	gleich
42	85	15	0	0,5	3,0	12300	besser
67	85	10	5	0	15,2*	10400	etwas besser
68	85	10	5	0,5	29,2*	11500	besser
69	85	5	10	0	34,3*	10500	etwas schlechter
70	85	5	10	0,5	41,4*	11600	etwas schlechter
71	85	0	15	0	34,6*	10800	schlechter
72	85	0	15	0,5	35,0*	11100	schlechter
9	80	20	0	0	2,5	9500	gleich
10	80	20	0	0,5	2,8	11800	besser
73	80	15	5	0	12,0*	9800	etwas besser
74	80	15	5	0,5	31,9*	10600	besser
75	80	10	10	0	46,5*	9300	etwas schlechter
76	80	10	10	0,5	53,9*	10300	etwas schlechter
77	80	5	15	0	45,4*	9400	schlechter
78	80	5	15	0,5	52,9*	10100	schlechter
79	80	0	20	0	48,0*	9200	schlechter
80	80	0	20	0,5	48,9*	10000	schlechter

- * --- Der Probekörper platzt bei der Zerstörung nicht ab.
- ** --- Polyäthylen mit niederer Dichte (0,92) und einem Schmelzindex von 1,6 bei 190°C unter einer Belastung von 2,16 kg.
- *** --- Das Mischpolymerisat hat einen Äthylengehalt von 38,4 Mol-% und eine Intrinsic-Viskosität $[\eta]$ von 1,38 in Tetralin bei 135°C.
- **** --- Wie in Beispiel 1 definiert.

Patentansprüche

P a t e n t a n s p r ü c h e

1. Formmasse auf Polypropylenbasis, bestehend aus
 - 1) einem ternären Gemisch von
 - (a) 65 bis 96, vorzugsweise 75 bis 85 Gew.-% kristallinem Polypropylen, das bei 230° C unter einer Belastung von 2,16 kg einen Schmelzindex von bis zu 10, vorzugsweise bis zu 2 besitzt,
 - (b) 2 bis 30, vorzugsweise 5 bis 20 Gew.-% unter Normalbedingungen festem Polyäthylen und
 - (c) 2 bis 20, vorzugsweise 5 bis 15 Gew.-% eines im wesentlichen amorphen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisats mit einem Gehalt von durchschnittlich 10 bis 70 Mol-% gebundenem Äthylen, einem Kristallinitätsgrad von bis zu 35 % und mit einer Intrinsic-Viskosität von mindestens 1,5, vorzugsweise mindestens 2,0 in Tetralin bei 135°C und
 - 2) auf 100 Gew.-Teile des ternären Gemisches 0,01 bis 5, vorzugsweise 0,05 bis 5 und insbesondere 0,1 bis 1 Gew.-Teilen mindestens einer aromatischen Sulfonsäureverbindung oder organischen Carbonsäureverbindung als Keimbildner (nucleating agent).
2. Formmasse auf Polypropylenbasis nach Anspruch 1, bestehend aus
 - 1) einem ternären Gemisch von
 - (a) 70 bis 90 Gew.-% kristallinem Polypropylen, das bei 230°C unter einer Belastung von 2,16 kg einen Schmelzindex von bis zu 10 hat,
 - (b) 5 bis 20 Gew.-% unter Normalbedingungen festem Polyäthylen und

(c) 5 bis 20 Gew.-% eines im wesentlichen amorphen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisats mit einem Gehalt von durchschnittlich 10 bis 70 Mol-% gebundenem Äthylen, einem Kristallinitätsgrad von bis zu 35% und mit einer Intrinsic-Viskosität von mindestens 1,5 in Tetralin bei 135°C und

2) auf 100 Gew.-Teile des ternären Gemisches 0,05 bis 1 Gew.-Teilen mindestens einer aromatischen Sulfonsäureverbindung oder organischen Carbonsäureverbindung als Keimbildner.

3. Formmasse auf Polypropylenbasis nach Anspruch 1, bestehend aus

1) einem ternären Gemisch von

(a) 75 bis 85 Gew.-% kristallinem Polypropylen, das bei 230°C unter einer Belastung von 2,16 kg einen Schmelzindex von bis zu 2 hat,

(b) 5 bis 20 Gew.-% unter Normalbedingungen festem Polyäthylen und

(c) 5 bis 15 Gew.-% eines im wesentlichen amorphen Äthylen-Propylen-Mischpolymerisats mit einem Gehalt von durchschnittlich 10 bis 70 Mol-% gebundenem Äthylen, einem Kristallinitätsgrad von bis zu 35% und einer Intrinsic-Viskosität von wenigstens 2,0 in Tetralin bei 135°C und

2) auf 100 Gew.-Teile des ternären Gemisches 0,1 bis 1 Gew.-Teilen mindestens einer aromatischen Sulfonsäureverbindung oder organischen Carbonsäureverbindung als Keimbildner.

4. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 3, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass sie ein Polypropylen enthält, das in Gegenwart eines Ziegler-Natta-Katalysators hergestellt ist,

in der Hauptsache aus Propylen besteht und mindestens 50 Gew.-% isotaktische Einheiten enthält.

5. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 3, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass sie als Polyäthylen ein Polymerisat enthält, das hauptsächlich aus Äthylen besteht und entweder ein Polyäthylen hoher oder niederer Dichte ist.

6. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 5, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass sie ein Polyäthylen niederer Dichte enthält.

7. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 3, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Äthylen-Propylen-Mischpolymerisat-Komponente ein im wesentlichen in heissem Heptan lösliches Polymerisat ist, das durch Polymerisation eines Gasgemisches aus Äthylen und Propylen in Anwesenheit eines Ziegler-Natta-Katalysators hergestellt ist.

8. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 3, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass sie als Keimbildner ein Salz eines Metalls der I., II. oder III. Gruppe einer aromatischen Sulfonsäure oder organischen Carbonsäure enthält.

9. Formmasse nach Anspruch 8, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass sie als Keimbildner ein Natrium-, Magnesium-, Calcium- oder Aluminiumsalz enthält.

10. Formmasse nach Anspruch 8, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass sie als Keimbildner ein Salz der α -Naph-

thalinsulfonsäure, 8-Aminonaphthalin-sulfonsäure, Benzolsulfonsäure, 2,5-Dichlorbenzolsulfonsäure oder m-Xylolsulfonsäure enthält.

11. Formmasse nach einem der Ansprüche 1 bis 3, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass sie ausserdem Stabilisatoren, Antioxydationsmittel, Farbstoffe, Verarbeitungshilfsmittel oder Füllstoffe oder Gemische dieser Zusätze in kleinen Mengen enthält.

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ **BLACK BORDERS**
- ☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**
- ☐ **FADED TEXT OR DRAWING**
- ☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**
- ☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**
- ☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**
- ☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**
- ☐ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**
- ☐ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**
- ☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)